



TITLE:

4.結晶成長における横枝発生機構 (パターン形成、運動と統計,研究会 報告)

AUTHOR(S):

田中, 敦; 沢田, 康次

CITATION:

田中, 敦 ...[et al]. 4.結晶成長における横枝発生機構(パターン形成、運動と統計,研究会報告). 物性研究 1988, 50(3): 298-301

ISSUE DATE:

1988-06-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/93114>

RIGHT:

4. 結晶成長における横枝発生機構

東北太・通研

田中 敦 沢田 康次

パターンの成長機構に関する種々の問題は、物理的及び数学的に興味深いものがある。その中でも結晶成長は、そのミクロなカインेटイクスがマクロな形態に決定的な影響を与えること、実験室においてパラメータの制御により、様々な形態が発生し得るなど、数々の優れた点を持ち、パターン形成における中心問題の一つと考えられる。

その中でも、横枝の発生機構は、もっとも重要な問題の一つとして昔から興味を持たれているが、今だに未解決な問題である。そこでわれわれは、塩化アンモニウムを用いて、二次元系 ($20 \pm 2 \mu\text{m}$) における樹枝状結晶成長を観測し、画像解析による定量的な測定を行った。

§ 1. 実験方法

実験系の概略を図1に示す。実験に使用した試料は、塩化アンモニウム33.3%水溶液で、飽和温度は、 48.9°C である。コントロールパラメータとして、 $\pm 0.1^\circ\text{C}$ の精度で系の温度を制御した。成長の様子は、顕微鏡を通してビデオに録画し、後に画像処理した。処理操作としては、オリジナル画像に対し smoothing を行い、2値化操作と補正を行った後、エッジ検出を行い、結晶の外郭をデータとした。

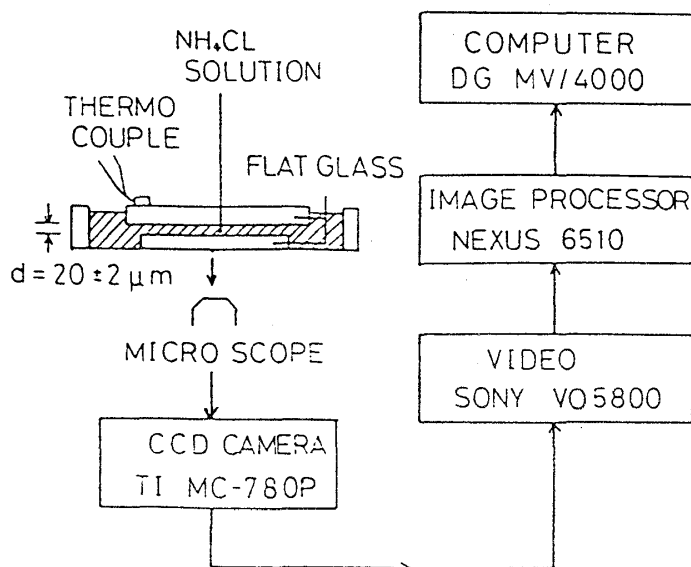


図 1

§ 2. 実験結果

樹枝状結晶の横枝は、放物形の結晶界面が不安定化することにより発生する。過冷却度 Δ ($\equiv T_m - T / T_m$) と、先端から横枝の出始める位置 (図 2) までの距離 d の関係を図示したものが図 3 である。ここでは、結晶先端に放物形を当てはめて、そこから目で見えて明らかにずれ始めたところを横枝の出始めと判断した。更に客観的な判断として、振幅の急激な変化の起こる点を、ある統計的手法に従って判断したものが図 4 である。

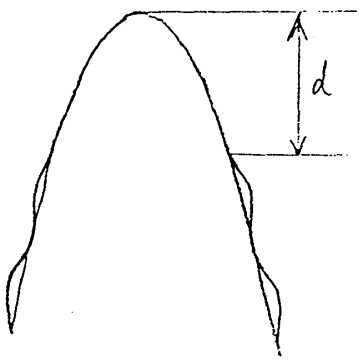


図 2

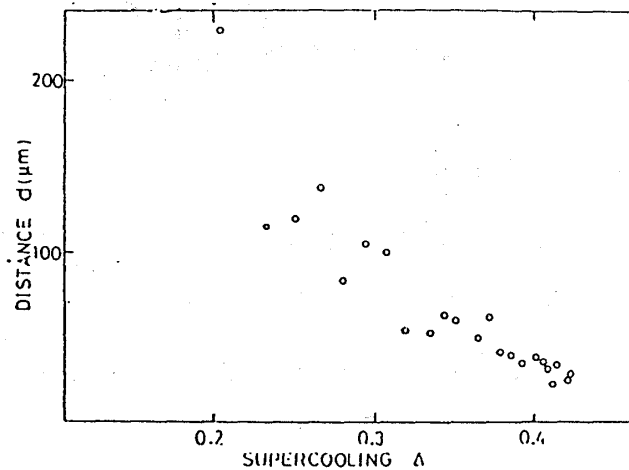


図 3

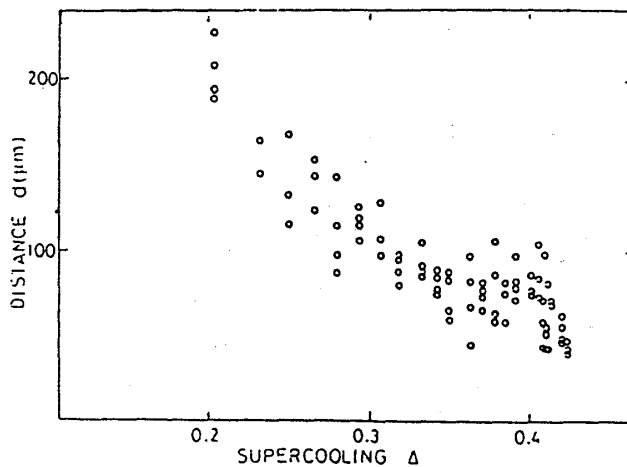


図 4

一方、先端の形状を近似した放物線からのずれを先端からの距離の関数として図 5 に示す。先端から後方に進むに従って横枝の周期に対応した振動が現れ、その振幅が増大する。その振幅をフーリエ変換した時に、その波長に対応して、鋭いピークが見られるはずである。この性質を利用することにより、フーリエ変換を用いて横枝の発生の有無及び波長を判定することが出来る。そこで図 5 に示したデータに対して、最大エントロピー法によりフーリエ変換を施すと図 6 のようになる。

(a) $\Delta = 8.2$



(b) $\Delta = 11.7$



(c) $\Delta = 13.0$



(d) $\Delta = 14.5$

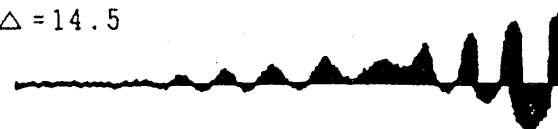


図 5

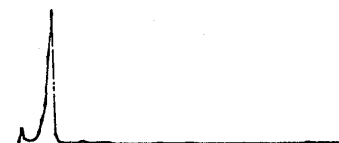
(a)



(b)



(c)



(d)

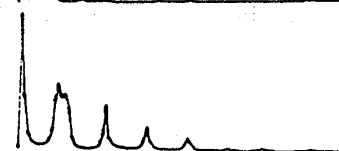


図 6

次に、先端からのサンプリング長 (L) を変化させてこの振幅をフーリエ変換すると、 L が増大するにつれて横枝の周期に対応するフーリエ成分が変化する。パワースペクトルにピークが見られなくなることは、その L の中には横枝の発生がないことを意味するので、横枝の発生点が判断できるだろう。図 5 (b) についてその変化を図示したものが図 7 である。この様に横枝の出始め位置を決めた時、過冷却度との関係をプロットすると、図 8 のようになる。

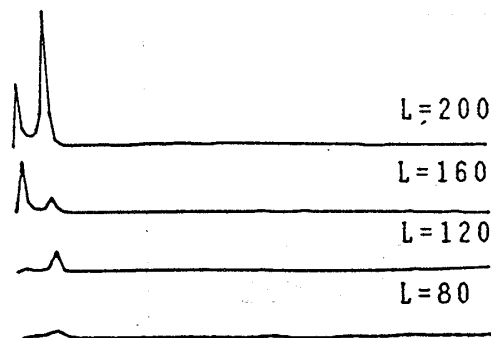


図 7

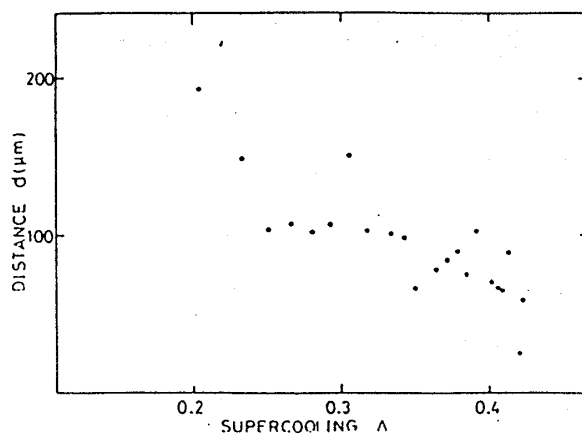


図 8

§ 3. Discussion

上記のように3つの判断方法いずれの場合にも、先端から横枝の出始める位置までの距離 d は、過冷却度 Δ と共に減少することが分かった。Langerらは、boundary layer model から理論的予測 $d \sim \{\Delta (\log C - 8 \log \Delta)\}^{1/2}$ (C : 定数) を得ているが、このモデルと実測結果の関係は目下検討中である。

また、結晶成長における重要な問題の1つである横枝の発生機構に関しては、先端に存在する少数自由度の力学系による決定論的機構と、先端におけるノイズが非線形的に増幅され、ある周波数成分が選択的に残る確率論的機構の2つの可能性がある。先端だけのデータ (L : 小) の broad なピークから、後方までデータに含めたとき (L : 大) に、鋭いピークに変化して行く様子は、後者のシナリオを支持する結果となっている。